

RECEIVED

AUG 21 2001

LARRY D. TIMBERLAKE

(12) PATENT PUBLICATION GAZETTE (B2)

(19) Patent Office of Japan

(11) Patent Publication No.:

5 - 57991

(22) (42) Publication Date: 8/25/1993

(51) Int. Cl.<sup>2</sup>

Classification No.

Int. Process No.

C 07 F 9 53

7106 -4H

Examination Status: Unclaimed: Number of Claims: 10 (7 Total Pages)

(54) Title of Invention: Phosphorous Containing Epoxy Compound and Manufacturing Method Therefor

(21) Application No.: 59-255956

(65) Disclosure No.: 61-134395

(22) Application Date: 12/3/1984

(43) June 21, 1986

(72) Inventor: Yoshio Takagishi

Sumitomo Chemical Co., Ltd.

3-1-98 Kasugadenaka, Konohana-ku, Osaka

(72) Inventor: Kazunori Kawakami

Sumitomo Chemical Co., Ltd.

3-1-98 Kasugadenaka, Konohana-ku, Osaka

(72) Inventor: Kunimasa Kamio

Sumitomo Chemical Co., Ltd.

3-1-98 Kasugadenaka, Konohana-ku, Osaka

(72) Inventor: Koichi Okano

Sumitomo Chemical Co., Ltd.

3-1-98 Kasugadenaka, Konohana-ku, Osaka

(71) Applicant: Sumitomo Chemical Co., Ltd.

4-5-33 Kitahama, Chuo-ku, Osaka

(74) Representative: Mitsuhiro Moroishi, Patent Attorney et. al.

Examiner: Tetsuo Tsukanaka

(57) Scope of Patent Claims

1. The phosphate containing epoxy compound represented by the following formula:

(Page 333 (Japanese original) top formula here)

(Wherein R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub> and R<sub>3</sub> may be identical or different, and each represent a hydrogen atom or an aliphatic group with a carbon count of 1 to 10).

2. The phosphate containing epoxy compound which is unique in that it causes poly phenol to react with epi halo hydrine, as represented by the following formula:

(Page 333, bottom formula here)

(Wherein  $R_1$ ,  $R_2$  and  $R_3$  may be identical or different, and each represent a hydrogen atom or an aliphatic group with a carbon count of 1 to 10).

#### Detailed Description of Invention

The present invention is related to a novel phosphate containing epoxy compound and the manufacturing method therefor. In greater detail, the present invention is related to a novel phosphorus containing epoxy compound which enables the formation of hardened epoxy resin objects that are highly flame resistant, and posses superior thermal resistance in terms of heat deterioration, glass transition, heat deformation, and the like, and the manufacturing method therefor. In recent years the higher concentration and developments in increased capacity and more reliable electric and electronic devices has been remarkable. The insulating materials, parts and the like used therein must increasingly improve in heat resistance, moisture resistance, dimension stability, and the like. Also, from a safety point of view insulating materials must be flame resistant.

In the past, brominate epoxy compounds such as the diglycidil ether of ditetrabromine bisphenol A, the poly glycidil of the phenol novolak, or the like were the epoxy compounds used as insulating materials. While these compounds possess a flame resistant effect, they lack in thermo stability and heat resistance. They are also known to have low drug resistance, electric characteristics, and the like.

The present invention takes into consideration the above conditions, and is the result of intense studies into the development of a flame resistant and heat resistant epoxy compound.

Nameily, the present invention provides the phosphate containing epoxy compound represented by following formula [I]:

[I] (Page 334 top formula here)

(Wherein  $R_1$ ,  $R_2$  and  $R_3$  may be identical or different, and each represent a hydrogen atom or an aliphatic group with a carbon count of 1 to 10); and a phosphate containing epoxy compound which is unique in that it causes poly phenol to react with epi halo hydrine as represented by following formula [II]:

[II] (Page 335 bottom formula here)

(Wherein  $R_1$ ,  $R_2$  and  $R_3$  may be identical or different, and each represent a hydrogen atom or an aliphatic group with a carbon count of 1 to 10).

Examples of the aliphatic groups represented by  $R_1$ ,  $R_2$  and  $R_3$  in formulas [I] and [II] may include the methyl group, ethyl group, butyl group, octyl group, or the like.

Specific examples of the polyphenols represented in formula [II] include: tris (3 - hydroxy phenyl) phosphine oxide; tris (3 - hydroxy - 4 - methyl phenyl) phosphine oxide; tris (3 - hydroxy - 4 - butyl phenyl) phosphine oxide; bis (3 - hydroxy - 4 - methyl phenyl) (3 - hydroxy phenyl) phosphine oxide; bis (3 - hydroxy phenyl) (3 - hydroxy - 4 - methyl phenyl) phosphine oxide; tris (3 - hydroxy phenyl) (3 - hydroxy - 4 - methyl phenyl) phosphine oxide; or the like.

The polyphenols represented in formula [II] may be achieved as follows:

[III] (Page 335 formulas here) [IV]

[IV]

[II]

(Wherein as stated above,  $R_1$ ,  $R_2$  and  $R_3$  may be identical or different in each of the formulas.)

Namely, a phosphine oxide [III] is nitrated to produce a trinitrate compound [IV]. Next this is made into a triamino compound [V] by reducing the nitro group to, for example, primary tin chloride and concentrated hydrochloric acid. [V] is diazotized, and then hydrolyzed to product the polyphenol [II].

The phosphate containing epoxy [I] of the present invention may be produced by causing the polyphenol represented in formula [II] to react with epi halo hydrine. The epi halo hydrine used in this reaction may include epi chlor hydrine, epi brom hydrine, epi iod hydrine, or the like, but from a commercial standpoint epi chlor hydrine is preferred. The usage ratio of said epi halo hydrine is between 2 and 50 mol for each equivalent phenol hydroxyl group of the polyphenol [II], with a range of between 3 and 25 mol preferred.

The reaction method therefor may employ an addition reaction using alkali and a dehalogenation hydrogen reaction. This a two step reaction wherein an addition reaction is caused using a quaternary ammonium salt catalyst, then a dehalogenation hydrogen reaction is caused using alkali, but either reaction method may be employed independently. The alkali used in this reaction may be sodium hydroxide, potassium hydroxide, calcium hydroxide, potassium carbonate, or the like, but sodium hydroxide and potassium hydroxide are preferred. In addition, specific examples of the catalyst may include quaternary ammonium sales such as tetra methyl ammonium chloride, tetra ethyl ammonium bromide, trimethyl benzyl ammonium chloride, and the like, or tertiary amines such as benzyl dimethyl amine, triethyl amine, N, N, N', N' - tetra methyl ethylene diamine, and the like. The usage volume of the alkali is 0.3 to 1.4 mol per equivalent phenol hydroxyl group of the polyphenol [II], with a range of between 0.9 and 1.3 mol preferred. The usage volume of the catalyst is 0.001 to 0.005 mol per equivalent phenol hydroxyl group.

The reaction temperature is between 40 and 130 °C, with 50 to 120 °C preferred. It is best to promote the reaction by removing the water produced therein.

After the reaction is completed, the byproduct salt is removed through filtering or the like, and the excess epi halo hydrine taken out to product the target substance.

The epoxy compound of the present invention may be used by itself or in combination with other compounds. As with other epoxy compounds it may be hardened

using polyamine hardeners such as aliphatic polyamine, aromatic polyamine, polyamide polyamine, or the like; acid anhydride hardeners such as anhydride hexa hydro phthalate, anhydride methyl tetra hydro phthalate, or the like; phenol hardeners such as phenol novolak, cresol novolak, or the like; or other hardeners such as boron trifluoride and other Lewis acids, or the salts thereof, dicyan diamides, polymercaptan, and the like. In addition to hardeners, the epoxy compound may contain hardening promoters, inorganic and organic fillers, lubricants and other compounds as needed. The epoxy compound of the present invention may be used as an insulating material, laminating material, sealant, molding material, composite material, or the like.

In addition, the epoxy compound of the present invention may effectively be used alone or in combination with other compounds as a flame resistant agent, oxidation preventing agent, ultraviolet light damage preventing agent, coloration preventing agent, or other like characteristic improving agent with a wide range synthetic resins such as polyolefin, polystyrene, poly chloride vinyl, ABS resins, polysulfone, polyester, phenol resins, and the like.

Furthermore, the epoxy compound of the present invention may effectively be used as a heat stabilizer, flame resistant agent, and the like on synthetic fibers which contained poly acryl nitrile, polyester, polyamide, and the like as their principal component.

Hereunder, we shall address example embodiments of the present invention.

#### Example Embodiment 1

49 g of tris (3 - hydroxy phenyl) phosphine oxide and 833 g of epi chlor hydrine are placed in a reaction vessel equipped with a thermometer, stirrer, drip filter and moisture removing device. This is then nitrogen replaced and heated to 105 °C. 11 g of a 48% sodium hydroxide solution is dripped in over forty minutes. During this time, the reaction temperature is maintained at between 105 and 110 ° C, and the water is azeotropically removed from the reaction with the epi chlor hydrine. The epi chlor hydrine is returned to the reaction.

Next, the reactant is cooled and vacuumed using 150 mmHg in pressure. It is then heated and boiled, and 34 g of a 48% sodium hydroxide solution is dripped in over two hours. During this period the water is azeotropically removed from the reaction with the epi chlor hydrine.

After the reaction, the byproduct salt is filtered out, and the filtrate is concentrated to produce 72 g of a light yellow, transparent, semi-solid epoxy compound. The epoxy equivalent is 170 g eq.

The elementary analysis figures for the resulting epoxy were as contained in Table

1.

Table 1		
	Actual Value	Theoretic Value
Carbon	65.2%	65.6%
Hydrogen	5.5%	5.5%
Phosphorus	6.2%	6.3%

In addition, under field desorption mass analysis, we confirmed a molecular mass of 494. Furthermore, the results of  $^1\text{H}$  nuclear magnetic resonance spectrum conducted by dissolving the epoxy in  $\text{CDCl}_3$ , are as contained in Table 2.

O = P (Page 336 formula hear)

Table 2

$\delta$ Value (ppm, TMS Standard)	Attribution	Strength
2.7	a	1
2.85	b	1
3.3	c	1
3.9	d	1
4.25	e	1
7.1 - 7.4	f	4

#### Example Embodiment 2

The 49 g of tris (3 - hydroxy phenyl) phosphine oxide is replaced with 55 g of tris (3 - hydroxy - 4 - methyl phenyl) phosphine oxide, and the remainder of the reaction is conducted in the same manner as contained in Example Embodiment 1 to produce 78 g of a light yellow, transparent, semi-solid epoxy compound. The epoxy equivalent thereof is 190 g / eq.

The elementary analysis figures for the resulting epoxy were as contained in Table 3.

Table 3

	Actual Value	Theoretic Value
Carbon	66.9%	67.2%
Hydrogen	6.3%	6.2%
Phosphorus	5.7%	5.8%

The structure of the resulting epoxy is as follows:

(Page 337 formula here)

#### Reference Example 1

The phosphate containing epoxy compounds produced in Example Embodiment 1 and Example Embodiment 2 are mixed with a bisphenol A epoxy resin (Sumiepoxy ELA-128, Sumitomo Chemical Industries). This is then heat hardened using a  $\text{BF}_3$  MEA (boron trifluoride mono ether amine complex), after which the flame resistance and glass transition temperature are measured. We measured flame resistance once using a tetra brom bis phenol A epoxy resin (Sumiepoxy ELB-400, Sumitomo Chemical Industries) and a non-reacting triphenyl phosphine oxide as the flame resistant agent, and once not using a flame resistant agent. The mixture ratios and measured values are contained in Table 4.

As clearly illustrated by the results in Table 4, hardened items which use the compound of the present invention are highly flame resistant and heat resistant.

Table 4

		Invention Example			Comparison Example		
		1	2	3	4	5	6
Mixture Ratio (by weight)	Sumiepoxy ELA-128	50	30	40	50	60	100
	Epoxy Compound of Example Embodiment 1	50	70	-	-	-	-
	Epoxy Compound of Example Embodiment 2	-	-	60	-	-	-
	Sumiepoxy ELB-400 <sup>(*)</sup>	-	-	-	50	-	-
	Tri Phenyl Phosphine Oxide	-	-	-	-	40	-
Phosphorus / Bromine Content (%)		3.0/0	4.1/0	3.3/0	0/23.5	4.3/0	0/0
Hardening Conditions		130 °C x 2 hours - 170 °C x 2 hours					
Flame Resistance <sup>(*)</sup>							
[Burn Time (seconds)]		2	1	2	2	1	> 180
[Burn Length (mm)]		7	5	9	9	6	> 75
Glass Transition Temperature (°C)		162	168	160	130	67	133

(\*1) Sumiepoxy ESB-400 has an epoxy equivalent of 398, and a bromine content of 48.2%.

(\*2) Measured using the JIS K - 6911 (1979) Flame Resistance A method.

## ⑫ 特許公報(B2)

平5-57991

⑬ Int. Cl.

C 07 F 9/53

識別記号

庁内整理番号

7106-4H

⑭ 公告 平成5年(1993)8月25日

発明の数 2 (全6頁)

⑮ 発明の名称 リン含有エポキシ化合物およびその製法

⑯ 特 願 昭59-255956

⑰ 公 開 昭61-134395

⑱ 出 願 昭59(1984)12月3日

⑲ 昭61(1986)6月21日

⑳ 発 明 者 高 岸 壽 男 大阪府大阪市此花区春日出中3丁目1番98号 住友化学工業株式会社内

㉑ 発 明 者 川 上 和 則 大阪府大阪市此花区春日出中3丁目1番98号 住友化学工業株式会社内

㉒ 発 明 者 神 尾 邦 政 大阪府大阪市此花区春日出中3丁目1番98号 住友化学工業株式会社内

㉓ 発 明 者 奥 野 孝 一 大阪府大阪市此花区春日出中3丁目1番98号 住友化学工業株式会社内

㉔ 出 願 人 住友化学工業株式会社 大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

㉕ 代 理 人 弁理士 諸石 光 薫 外1名

㉖ 審 査 官 塚 中 哲 雄

RECEIVED

1

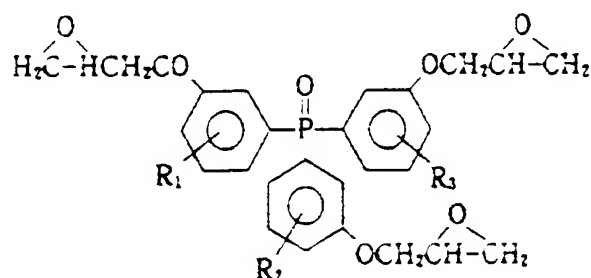
2

AUG 21 2001

LARRY D. TIMBERLAKE

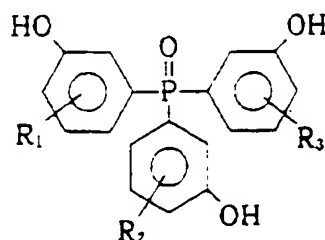
## ⑳ 特許請求の範囲

1 下記一般式



(式中、 $R_1$ 、 $R_2$ および $R_3$ は同一かまたは異なり、水素原子または炭素数1~10の脂肪族基を表わす。)で示されるリン含有エポキシ化合物。

2 下記一般式



(式中、 $R_1$ 、 $R_2$ および $R_3$ は同一かまたは異なり、水素原子または炭素数1~10の脂肪族基を表わす。)で示されるポリフェノール類とエポキシヒドリンとを反応させることを特徴とするリン含有エポキシ化合物の製法。

## 発明の詳細な説明

本発明は、新規なリン含有エポキシ化合物ならびにその製法に関する。更に詳細には、高度の難燃性を有し、且つ耐熱劣化性、ガラス転移点、熱変形温度等の耐熱特性に優れたエポキシ樹脂硬化物を形成させることができる新規なリン含有エポ

キシ化合物ならびにその製法に関するものである。

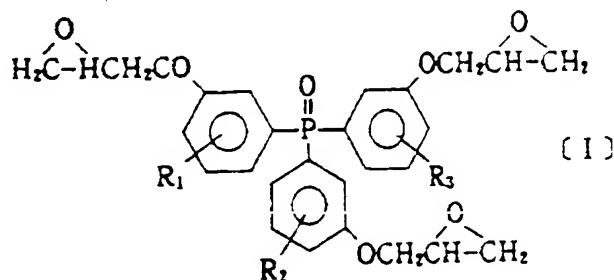
近年、電気・電子機器の高集積化、高性能化、高信頼性化には目を見張るものがあるが、それと共に、それに使用される絶縁材料、部品等に対して、耐熱性、耐湿性、寸法安定性等の諸性能のより一層の向上が望まれている。更に、機器の安全性の点から絶縁材料の難燃化は必須要件とされている。

従来より、これら絶縁材料の難燃化に用いられるエポキシ化合物は、テトラブロムビスフェ

\*ノールAのジグリシジルエーテル、ブロム化フェノールノボラックのポリグリシジルエーテル等のいわゆるブロム化エポキシ化合物であるが、これらについては、難燃効果は認められるものの、熱安定性が悪く耐熱性の劣ることが問題となつてい

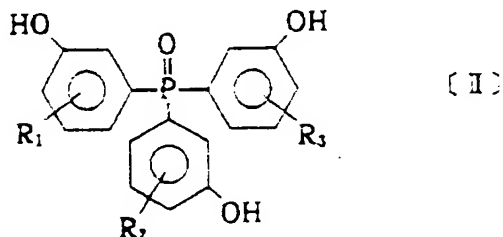
る。本発明者らは、かかる現状に鑑み、難燃性で且つ耐熱性の良好なエポキシ化合物を開発すべく鋭意検討した結果、本発明に到達した。

すなわち、本発明は、下記一般式〔I〕



(式中、 $R_1$ 、 $R_2$ および $R_3$ は同一または異なり、水素原子または炭素数1~10の脂肪族基を表わす。)

で示されるリン含有エポキシ化合物、および下記一般式〔II〕



(式中、 $R_1$ 、 $R_2$ および $R_3$ は前記と同じ意味を表わす。)

で示されるポリフェノール類とエピハロヒドリンを反応させることを特徴とするリン含有エポキシ化合物の製法を提供する。

前記一般式〔I〕および〔II〕において $R_1$ 、

$R_2$ および $R_3$ で表わされる脂肪族基としてはメチル基、エチル基、ブチル基、オクチル基などが例示される。

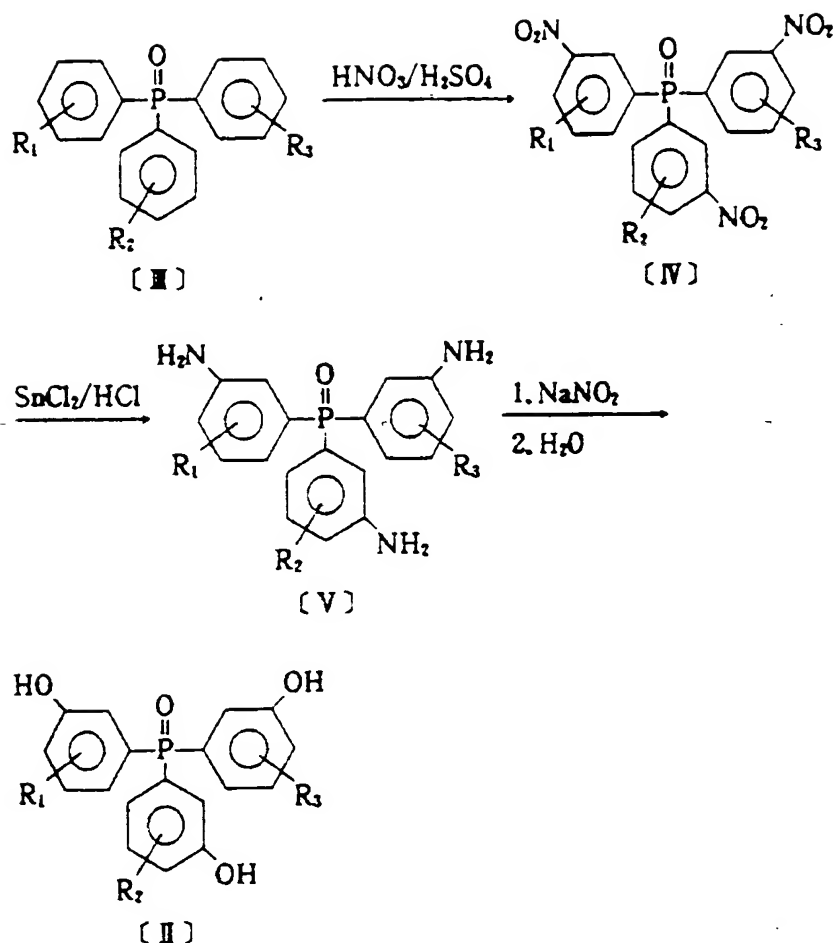
前記一般式〔II〕で示されるポリフェノール類としては具体的には、トリス(3-ヒドロキシフェニル)ホスフィンオキシド、トリス(3-ヒドロキシ-4-メチルフェニル)ホスフィンオキシド、トリス(3-ヒドロキシ-4-ブチルフェニル)ホスフィンオキシド、ビス(3-ヒドロキシ-4-メチルフェニル)(3-ヒドロキシフェニル)ホスフィンオキシド、ビス(3-ヒドロキシフェニル)(3-ヒドロキシ-4-メチルフェニル)ホスフィンオキシド、トリス(3-ヒドロキシ-4-ノニルフェニル)ホスフィンオキシド等を例示することができる。

前記一般式〔II〕で表わされるポリフェノール類は例えば次のようにして得ることができる。



5

6



(各式中、 $R_1$ 、 $R_2$ および $R_3$ は前記と同じ意味を表わす。)

すなわち、ホスフィンオキシド〔Ⅲ〕をニトロ化することにより、トリニトロ化合物〔Ⅳ〕へ導き、ついでニトロ基を例えば塩化第一スズと濃塩酸とで還元してトリアミノ化合物〔Ⅴ〕となし、更に〔Ⅴ〕をジアゾ化後、加水分解することにより、ポリフェノール〔Ⅱ〕を得ることができる。

本発明のリン含有エポキシ化合物〔Ⅰ〕は、前記一般式〔Ⅱ〕で表わされるポリフェノール類とエビハロヒドリンとを反応させることにより得ることができる。使用するエビハロヒドリンとしては、例えばエビクロヒドリン、エビブロムヒドリン、エビヨードヒドリン等が挙げられるが工業的にはエビクロヒドリンが好ましい。該エビハロヒドリンの使用割合は前記ポリフェノール類〔Ⅱ〕のフェノール性水酸基1当量に対し通常2～50モル、好ましくは、3～25モルの範囲である。

その反応方法としては、アルカリを用いて付加

反応と脱ハロゲン化水素反応とを一挙に行なわせる一般法と、第四級アンモニウム塩等の触媒を用いて一旦付加反応を行なわせた後、アルカリで脱ハロゲン化水素反応を行なわせる二段法とがあるが、いずれの方法も採用することができる。使用するアルカリとしては、例えば水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化カルシウム、炭酸カリウム等が挙げられるが、水酸化ナトリウム、水酸化カリウムが好ましい。又、触媒としては、具体的にはテトラメチルアンモニウムクロリド、テトラエチルアンモニウムブロミド、トリメチルベンジルアンモニウムクロリド等の第四級アンモニウム塩、ベンジルジメチルアミン、トリエチルアミン、 $N$ 、 $N$ 、 $N'$ 、 $N'$ -テトラメチルエチレンジアミン等の第三級アミン等を例示することができる。アルカリの使用量は、前記ポリフェノール類〔Ⅱ〕のフェノール性水酸基1当量に対し、通常0.8～1.4モル、好ましくは0.9～1.3モルの範囲である。触媒の使用量は、フェノール性水酸基1当量に対し、通常0.001～1モル好ましくは0.005

7

8

~0.5モルの範囲である。

反応温度は40~130℃、好ましくは50~120℃である。反応で生成した水を反応系外に除去しながら反応を進行させるのが好ましい。

反応終了後、副生した塩をろ過等により除去し、過剰のエピハロヒドリンを留去することにより、目的物が得られる。

本発明のエポキシ化合物は単独で、又は他のエポキシ化合物との併用で、通常のエポキシ化合物と同様に、脂肪族ポリアミン、芳香族ポリアミン、ポリアミドポリアミン等のポリアミン系硬化剤、無水ヘキサヒドロフタル酸、無水メチルテトラヒドロフタル酸等の酸無水物系硬化剤、フェノールノボラック、クレゾールノボラック等のフェノール系硬化剤、三フッ化ホウ素等のルイス酸及びそれらの塩類、ジシアジアミド類、ポリメルカプタン類等の硬化剤により硬化させることができる。又、硬化剤のほかに、必要に応じて、硬化促進剤、無機又は有機の充填剤、滑剤等の種々の配合剤を添加することができる。本発明のエポキシ化合物を用いたエポキシ樹脂硬化物は、難燃性が要求される広範な分野に用いることができる。具体的には、絶縁材料、積層板、封止材料、成型材料、複合材料等を例示することができる。

更に本発明のエポキシ化合物は、ポリオレフィン、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル、ABS樹脂、ポリスルホン、ポリエステル、フェノール樹脂等広範囲の合成樹脂に対して、難燃剤、酸化防止剤、紫外線劣化防止剤、着色防止剤等の特性改良剤として単独で又は混合して有効に使用することができる。

更に又、本発明のエポキシ化合物は、ポリアクリロニトリル、ポリエステル、ポリアミド等を主成分とする合成繊維に対して、耐熱安定剤、難燃剤等として有効に使用することができる。

以下、本発明を実施例により説明する。

### 实施例 1

温度計、攪拌器、滴下漏斗及び生成水分離装置のついた反応器に、トリス（3-ヒドロキシフェニル）ホスフィンオキシド49g及びエビクロルヒドリン833gを仕込み、窒素置換を行なった後、105℃まで加熱した。ここへ48%水酸化ナトリウム水溶液11gを40分間にわたって滴下した。その間反応温度を105~110℃に保ち、水をエビクロルヒ

ドリンとの共沸により反応系外に除去し、エピクロルヒドリンは系内に留した。

ついで、反応液を冷却し、反応系を減圧して圧力150mmHgとし、系を加熱して沸騰させながら、48%水酸化ナトリウム水溶液34gを2時間で滴下し、この間、水をエピクロルヒドリンとの共沸により除去した。

・ 反応終了後、副生した塩をろ過により除去し、  
ろ液を濃縮することにより、淡黄色透明な半固型  
状のエポキシ化合物72gを得た。エポキシ当量は  
176g/eqであつた。

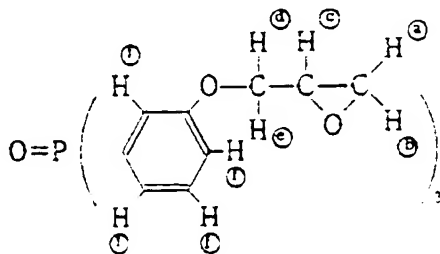
生成物の元素分析値は第一表の通りであつた。

第 1 表

	実測値	理論値
炭素	65.2%	65.6%
水素	5.5%	5.5%
リン	6.2%	6.3%

又、電界脱離質量分析の結果、生成物の分子量が494であることが確認された。更に、生成物を $\text{CDCl}_3$ 中に溶解して測定した $^1\text{H}$ 核磁気共鳴スペクトルの結果を第2表に示した。

以上の結果から、生成物の構造は下記の通りであることが確認された。



第 2 表

δ 值(調、TMS基準)	帰属	強度比
2.7	a	1
2.35	b	1
3.3	c	1
3.9	d	1
4.25	e	1
7.1-7.4	f	4

## 実施例 2

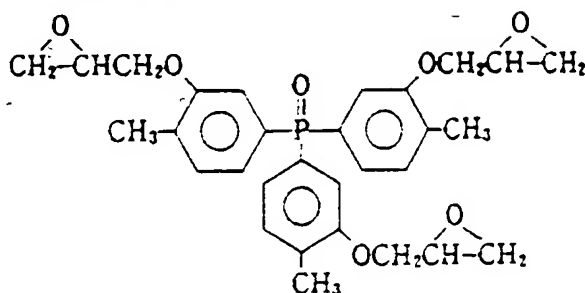
トリス(3-ヒドロキシフェニル)ホスフィンオキシド49gの代りに、トリス(3-ヒドロキシ-4-メチルフェニル)ホスフィンオキシド55gを用いる以外は、実施例1と同様に反応して黄色透明の半固型状のエポキシ化合物78gを得た。エポキシ当量は190g/eqであつた。

元素分析は第3表の通りであり、

第3表 元素分析値

	実測値	理論値
炭素	66.9%	67.2%
水素	6.3%	6.2%
リン	5.7%	5.8%

生成物の構造は下記の通りであつた。



## 参考例 1

ビスフェノールA系のエポキシ樹脂(スミエポキシ ELA-128:住友化学製)に、実施例1および実施例2で得られたリン含有エポキシ化合物を配合し、BF<sub>3</sub>・MEA(三フッ化ホウ素モノエチルアミン錯体)を硬化剤に用い加熱硬化させた後、難燃性、ガラス転移温度を測定した。

難燃剤として、テトラブromビスフェノールA

系のエポキシ樹脂(スミエポキシ ESB-400:住友化学製)及び非反応性のトリフェニルホスフィンオキシドを用いた場合、及び難燃剤を用いない場合についても測定した。配合処方及び測定結果を第4表にまとめた。

第4表から明らかなように、本発明の化合物を用いた硬化物は、耐燃性、耐熱性に優れていることがわかる。

第 4 表

処 方		本発明例			比較例		
		1	2	3	4	5	6
配合割合 (重量比)	スミエポキシ ELA-128	50	30	40	50	60	100
	実施例1のエポキシ化合物	50	70	—	—	—	—
	実施例2のエポキシ化合物	—	—	60	—	—	—
	スミエポキシ ESB-400 <sup>(*)</sup>	—	—	—	50	—	—
	トリフェニルホスフィンオキシド	—	—	—	—	40	—
	BF <sub>3</sub> ・MEA	3	3	3	3	3	3
リン/ブrom含量(%)		3.0/0	4.1/0	3.3/0	0/23.5	4.3/0	0/0
硬化条件		130℃×2時間+170℃×2時間					
耐燃性 <sup>(**)</sup>	燃焼時間(秒)	2	1	2	2	1	>180

11

12

		本発明例			比較例		
		1	2	3	4	5	6
	処方						
	燃焼距離(mm)	7	5	9	9	6	>75
	ガラス転移温度(℃)	162	168	160	130	67	133

(\*1) 用いたスミエポキシESB-400はエポキシ当量398、ブロム含量48.2%であった。

(\*2) JIS K-6911(1979)耐燃性のA法により測定した。